

BEST AVAILABLE COPY

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-114552

(43)Date of publication of application : 06.05.1998

(51)Int.Cl.

C03C 27/06
E06B 3/66

(21)Application number : 08-346292

(71)Applicant : ASAHI GLASS CO LTD

(22)Date of filing : 25.12.1996

(72)Inventor : SHIBUYA TAKASHI
NAKAGAWA HIDEKI
KODERA SHOGO
MATSUYAMA YOSHITAKA

(30)Priority

Priority number : 07339629
08214865Priority date : 26.12.1995
14.08.1996

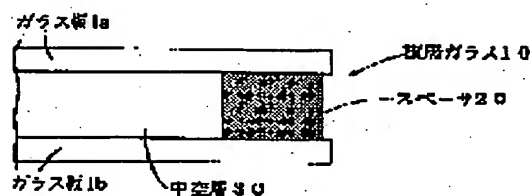
Priority country : JP

JP

(54) PLURAL-LAYER GLASS USING RESIN SPACER**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To eliminate the need for a secondary sealing material and to reduce the cost in the plural-layer glass formed by opposing plural glass sheets to one another to form a hollow layer with a spacer in between by forming the spacer from a specified thermoplastic resin composition.

SOLUTION: The spacer 20 is formed from a thermoplastic resin composition contg. 50-98wt.% butyl rubber (e.g. partially cross-linked butyl rubber) and 2-50wt.% crystalline polyolefin (e.g. high-density PE) (100wt.% in total) and further contg., as required, ≥ 200 pts.wt. of an inorg. filler (e.g. talc) based on 100 pts.wt. of the butyl rubber and crystalline polyolefin. The steam permeability coefficient of the crystalline polyolefin and/or butyl rubber is preferably controlled to $\leq 3,000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ and/or that of the thermoplastic resin composition to $\leq 5,000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

15.07.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are **not** responsible for any damages caused by **the** use of this translation.

- 1.This document **has** been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the **w**ord which can not be translated.
- 3.In the drawings, **a**ny words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] For the **rate** of butyl system rubber of on the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them, and as opposed to both total quantity including butyl system rubber and crystalline polyolefine, said spacer is [the rate of 50 - 98 % of the weight, and crystalline polyolefine] multiple glass using the resin spacer characterized by consisting of a thermoplastics constituent it is [constituent] 2 - 50 % of the weight.

[Claim 2] In the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them said spacer

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are **not** responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]**[0001]**

[Field of the Invention] This invention relates to the multiple glass which used the spacer made of resin.

[0002]

[Description of the Prior Art] In recent years, multiple glass is goods which it is observed from a viewpoint of energy saving and the need is continuing increasing. Since many processes are required for the manufacture, compared with the usual glass plate, cost is high, and the further low cost-ization is desired.

[0003] As shown in drawing 4, many of present multiple glass makes the glass plates 1a and 1b of at least two sheets counter through a spacer 2, and it comes to form a hollow layer among glass plates 1a and 1b. And it has come to seal the opening (crevice) which intercepted the hollow layer from the open air and consisted of the insides and spacer peripheral faces of the periphery section of those glass plates that have countered in the two-stage-sealing material of the room-temperature-setting mold represented with a polysulfide system or a silicone system by making the one-stage-sealing material 3 intervene between glass plates 1a and 1b and a spacer 2.

[0004] In the production process of multiple glass, the productivity amelioration by various simplification or automation, as a result a cost cut, etc. have so far been considered and proposed. For example, an aluminum spacer is bent, it is made a method or making the method of application of a room-temperature-setting mold sealant automate is raised. Moreover, the approach using the resin which scoured the drying agent instead of the aluminum spacer as shown in drawing 5 as a spacer 4 has also been proposed.

[0005] However, in the multiple glass using such a room-temperature-setting mold sealant, the class of spacer used is not asked but care of health of long duration is needed after multiple glass manufacture for hardening of a sealant. Therefore, care-of-health termination cannot ship a product.

[0006] Therefore, a care-of-health tooth space is provided in works, after keeping a certain fixed period product, it must ship, and time for delivery delays, and the request of a user could not necessarily be met. Moreover, in order to correspond to the need which will increase in the future, to avoid this since the care-of-health tooth space more than the former is needed and to secure the amount of supply of sufficient multiple glass, compaction of the above-mentioned care-of-health time amount is considered to be the need.

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] From the point of low-cost-izing of multiple glass, the method of manufacturing multiple glass, without using two-stage-sealing material is proposed, using as a spacer the moldings which consists of resin which scoured the drying agent (JP,61-20501,B). However, maintenance of the configuration as multiple glass was [the spacer independent which degrees of hardness run short as a spacer, and consists of the above-mentioned resin in fact] difficult for this resin for spacers.

[0008] Moreover, JIS which scoured the drying agent to thermoplastics, such as the rigid resin in

which extrusion molding is possible, for example, vinyl chloride resin, and hot melt butyl. Multiple glass using the ingredient which has the hardness of the A degree of hardness 95 as a spacer is known (JP,7-17748,A). However, this JIS When the ingredient which has the hardness of the A degree of hardness 95 is used as the spacer or sealant of multiple glass, the stress concerning the seal section or the glass plate of multiple glass is large, and there are difficulties, like the glass crack of exfoliation of the seal section or multiple glass itself arises. Therefore, the multiple glass which is satisfied only with the spacer demanded as multiple glass of all properties, such as a life, configuration maintenance nature, and a moldability, is not known for the present condition, without using two-stage-sealing material.

[0009] By the way, as JP,7-17748,A also has instantiation of hot melt butyl, butyl system rubber is used as sealants, such as a building-materials application, from the field of the adhesiveness, high weatherability, and low moisture permeability. However, depending on a use application, since a degree of hardness is low and there is cold flow nature, if independent in respect of endurance over a long period of time, there is a problem. Moreover, since melt viscosity is high, the problem of being bad also has workability. In order to raise a degree of hardness, there is also the approach of mixing various fillers, but if only addition of a filler performs high degree-of-hardness-ization, since tensile strength and tear reinforcement fall depending on the case in addition to melt viscosity going up and spoiling workability remarkably, it is not desirable.

[0010] Namely, butyl system rubber carries out the seal of the field between a glass plate and a spacer, and since it has the function to maintain airtightness, it can use it suitably as an edge sealant of multiple glass. In this case, metal spacers, such as a product made from aluminum, will usually be used from the degree of hardness of butyl system rubber being low, and butyl system rubber will be arranged as a sealant between a spacer and a glass plate. However, the production process of the need [of using a metal spacer as mentioned above] top multiple glass is complicated.

[0011] In this way, a metal spacer is not needed but development of the sealant which can simplify a production process more is desired. The multiple glass which is satisfied only with the spacer demanded as multiple glass of all properties, such as a life, configuration maintenance nature, and a moldability, is not known for the present condition, without using two stage sealing.

[0012] The purpose of this invention solves the problem of the care of health which requires the long duration after manufacture, and is to offer the multiple glass which can realize unprecedented high productivity.

[0013]

[Means for Solving the Problem] In the multiple glass with which it ****(ed) and opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was carried out through the spacer so that a hollow layer might be formed between them, as for this invention, the rate of butyl system rubber of as opposed to [including butyl system rubber and crystalline polyolefine] both total quantity in said spacer offers the multiple glass using the resin spacer characterized by the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine consisting of a thermoplastics constituent which is 2 - 50 % of the weight.

[0014] In the multiple glass by which opposite arrangement was ****(ed) and carried out through the spacer so that, as for this invention, the glass plate of two or more sheets might form a hollow layer between them moreover, said spacer The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler 50 - 98 % of the weight, The rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the multiple glass using the resin spacer characterized by the rate of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine consisting of a thermoplastics constituent which is below the 200 weight sections is offered.

[0015]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, with reference to a drawing, this invention is further explained to a detail. Drawing 1 is the partial outline sectional view showing an example of the configuration of the multiple glass of this invention, and it comes to hold multiple glass 10 at

predetermined interval only by the spacer 20 which consists of a thermoplastics constituent of the following blending ratio of coal so that the hollow layer 30 may be formed for the glass plates 1a and 1b of two sheets in between. In addition, the above semantics of "being based only on a spacer 20" shall point out making unnecessary the spacer made from a two-stage-sealing material metallurgy group etc. otherwise, and shall include priming applied if needed.

[0016] The resin constituent for spacers in this invention is a resin constituent whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber of as opposed to both total quantity including butyl system rubber and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight.

[0017] Moreover, the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the rate of butyl system rubber of as opposed to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler is the resin constituent whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine are below the 200 weight sections.

[0018] The butyl system rubber in this invention means the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of an isobutylene. The copolymer (what is usually called isobutylene isoprene rubber) obtained by copolymerizing with comparatively a small amount of isoprene as a copolymer is desirable. Halogenation isobutylene isoprene rubber, partial bridge formation isobutylene isoprene rubber, etc. are one of denaturation objects. Especially desirable butyl system rubber is the copolymer of the isobutylene and isoprene which are usually called isobutylene isoprene rubber, and partial bridge formation isobutylene isoprene rubber.

[0019] The crystalline polyolefine in this invention is the copolymers with a homopolymer or other monomers and those denaturation objects of olefins, such as ethylene and a propylene, and says what has crystallinity. Other structures may be included although it is desirable that they are syndiotactic structure and isotactic structure as for the structure of a polymer. Especially as an olefin, ethylene and a propylene are desirable.

[0020] As a copolymer, there are a copolymer of two or more sorts of olefins and a copolymer of an olefin and other monomers, and the copolymer of ethylene, a propylene, and other monomers that do not check crystallinity is suitable. Moreover, as a copolymer, a block copolymer is more suitable than an alternating copolymer and a random copolymer. There is crystalline polyolefine which introduced functional groups, such as an acid-anhydride radical, a carboxyl group, and an epoxy group, as a denaturation object.

[0021] In this invention, especially desirable crystalline polyolefine is the polyethylene and polypropylene which are a substantial homopolymer. For example, low density polyethylene, medium density polyethylene, high density polyethylene, etc. can be used as polyethylene.

[0022] 30% or more of the degree of crystallinity of crystalline polyolefine is desirable, and is desirable. [especially 50% or more of] For example, the value of the typical crystallinity in the usual crystalline polyolefine is 55 - 65% with polypropylene 75 to 90% in high density polyethylene 50 to 60% at low density polyethylene. Although especially molecular weight is not limited, with polyethylene, the thing of about 100,000-400,000 is suitable in about 200,000-800,000 and polypropylene at number average molecular weight.

[0023] Thus, since polyethylene and polypropylene have high crystallinity, from butyl system rubber, it is low moisture permeability, and as compared with a butyl system rubber independent case, the melt viscosity of a constituent falls and fabrication nature of what shows melt viscosity lower especially improves. Therefore, it becomes possible again to blend various inorganic fillers, and the sealant of a high degree of hardness is realized, and these are desirable also especially from a viewpoint of economical efficiency.

[0024] In the above-mentioned resin constituent, the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and is 5 - 40 % of the weight preferably. If a raise in the degree of hardness of butyl system rubber is difficult for the rate of crystalline polyolefine and it exceeds 50 % of the weight at less than 2 % of the weight, the property of crystalline polyolefine will serve as a subject and it will be hard coming to be discovered of the property of butyl system rubber.

[0025] When an inorganic filler is blended, there are few rates of crystalline polyolefine to the

total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, and they end. For example, when the inorganic filler more than the about 50 weight section is blended to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine, as for the rate of crystalline polyolefine to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine, the target effectiveness is enough demonstrated at 2 - 20 % of the weight.

[0026] The inorganic filler of an effective dose can be substantially blended with the resin constituent in this invention containing butyl system rubber and crystalline polyolefine. An effective dose means more than 1 weight section to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine substantially. Since the melt viscosity of a constituent goes up and, as for blending too much a lot of inorganic fillers, tensile strength and tear reinforcement fall, the upper limits of loadings are the 200 weight sections, and are the 150 weight sections preferably. The minimums with the desirable loadings in inorganic filler combination are 10 weight sections.

[0027] As an inorganic filler, it is independent, or they can use what is usually used as an inorganic filler for a calcium carbonate, talc, a mica, two or more sorts of carbon black, etc., using together.

[0028] Before the resin constituent for spacers in this invention is used for an application final at least, it is very effective that the butyl system rubber contained in it and crystalline polyolefine are mixed under an elevated temperature. The elevated temperature in this mixing means the temperature beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine. This mixed temperature needs to be below the decomposition point of butyl system rubber, and is desirable. [of about 300 degrees C or less which is the decomposition point of usual butyl system rubber] 200 degrees C or less are especially desirable from fields, such as productivity. Therefore, the crystalline melting point of crystalline polyolefine also has desirable 200 degrees C or less again.

[0029] As for the resin ingredient for spacers, in the operating temperature limits, it is more desirable that there is as much as possible little degree-of-hardness change. In order to satisfy such requirements, as crystalline polyolefine, what has a crystalline melting point beyond anticipated-use upper limit temperature is desirable. The anticipated-use upper limit temperature of the resin ingredient for spacers is about 80 degrees C.

[0030] Since crystalline polyolefine is restrained by the cohesive force by the crystal phase in this invention, the rapid degree-of-hardness fall or flow condition which are looked at by the non-crystalline polymer also in the temperature field beyond glass transition temperature do not happen below by the crystalline melting point. On the contrary, the remarkable fall of melt viscosity is seen bordering on a crystalline melting point, and the effectiveness of making kneading nature with butyl system rubber becoming good can be expected.

[0031] The drying agent and additive in which it is generally blended with a resin ingredient required for a spacer application, and deals can be blended with such a resin constituent. As an additive here, there are fillers other than hydrolysis nature silyl radical content compounds, such as lubricant, a pigment, an antistatic agent, a tackifier, a plasticizer, an antioxidant, a thermostabilizer, an antioxidant, and a silane coupling agent, a foaming agent, and said inorganic filler etc., for example. When using especially this resin constituent for a spacer, combination of drying agents, such as a zeolite, silica gel, and an alumina, a tackifier, a plasticizer, a silane coupling agent, and various stabilizers is desirable.

[0032] It is desirable to blend especially drying agents, such as a zeolite, five to 30% of the weight into a resin constituent. Moreover, in order to give the adhesion grant effectiveness and the plasticization effectiveness, it is also desirable to carry out 5-150 weight section addition of the polyisobutylene especially below the 200 weight sections to the butyl system rubber 100 weight sections other than a polyisobutylene.

[0033] Especially the desirable component blending ratio of coal of the resin constituent for spacers is 30 - 55 % of the weight of butyl system rubber, 1 - 8 % of the weight of crystalline polyolefines, 15 - 30 % of the weight of inorganic fillers, a desiccating agent, and 20 - 40 % of the weight of additives putting the above together (of course, the rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine is [the rate of crystalline polyolefine] 2 - 50 % of the weight 50 to 98% of the weight).

[0034] As for the above-mentioned resin constituent, it is desirable to mix butyl system rubber and crystalline polyolefine at the temperature below the decomposition point of butyl system rubber beyond the crystalline melting point of crystalline polyolefine at least, and to be manufactured. Especially this mixed temperature has desirable 120-250 degree-C** 100-280 degrees C. You may mix to coincidence and other compounds and additives may be mixed before the mixing or to the back.

[0035] The constituent in this invention is a thermoplastic constituent substantially, and can be mixed with mixers, such as the usual melting mixing extruder and a kneader. Furthermore, it can also fabricate continuously with mixed actuation. Moreover, a constituent can be manufactured, it can consider as molding materials, such as a pellet type, and the postforming can also be performed. As a fabricating method, the melting fabricating methods, such as an extrusion-molding method and an injection-molding method, can be used.

[0036] Moreover, it arranges at the edge of the multiple glass ingredient with which opposite arrangement of the glass plate of two or more sheets was continuously carried out in the moldings with shaping actuation, and multiple glass can be manufactured. In this case, by using the hot constituent which came out of the making machine, a high adhesive property with a glass plate is acquired. Moreover, it is also applicable to a multiple glass ingredient, controlling the temperature fall of a constituent using equipments, such as an applicator. What can be heated as this equipment is desirable.

[0037] As mentioned above, the resin constituent for spacers in this invention kneads the above-mentioned component, and is prepared. It is desirable to blend a need component so that the JISA degree of hardness in 25 degrees C of the resin constituent obtained may become 90 or less on the occasion of the preparation. The reason made or less into 90 is as follows.

[0038] JIS It is JIS in order that a creep may hardly occur, when it is going to use the thermoplastics with which A degree of hardness exceeds 90 as a spacer of multiple glass. When the durability test shown in R3209 is carried out, the stress by expansion of air is applied to the adhesion interface of a glass plate and a spacer under an elevated temperature. For this reason, if adhesive strength is inadequate, even when exfoliation occurs and adhesive strength is secured temporarily, glass may break. Although it is possible to obtain only the adhesive strength which bears the stress to which a hollow layer expands by applying an elevated temperature or high pressure also with the adhesives known now, since breakage of glass occurs and productivity falls remarkably by applying elevated-temperature high pressure, the purpose of this invention aiming at manufacture cost reduction is not met.

[0039] JIS in 25 degrees C of a resin constituent on the other hand since a problem will arise to the configuration maintenance nature of multiple glass if a degree of hardness is too low As for A degree of hardness, it is desirable to blend a need component so that it may become ten or more. Furthermore, it is JIS. Even if A degree of hardness is ten or more, a plate gap may be caused when a degree of hardness is comparatively small, and the thickness of a hollow layer is thick.

[0040] The thickness of the hollow layer of the multiple glass generally used is about 4-18mm (there is much what is 6mm or 12mm). Therefore, when a degree of hardness is comparatively small, even if a plate gap does not arise in that whose thickness of a hollow layer is 6mm, a plate gap may arise in a 12mm thing. Even if the thickness of a hollow layer is 12mm, it can avoid producing a plate gap by making the above-mentioned degree of hardness or more into 40. As for especially the JISA degree of hardness of a thermoplastics spacer, in the multiple glass in this invention from this, 40 or more are desirable.

[0041] JIS Multiple glass using the resin constituent with which A degree of hardness exceeds 90 as a spacer has the large stress concerning a glass plate. Therefore, JIS With any multiple glass using a glass plate with 5mm [in thickness specified by R3209], and a thickness of 3mm, a glass crack arises during an acceleration durability test.

[0042] On the other hand, JIS A degree of hardness does not generate a glass crack in the above-mentioned trial with the multiple glass for which multiple glass using the resin constituent of 90 as a spacer used the glass plate with a thickness of 5mm. On the other hand, the glass crack may have generated the multiple glass using a glass plate with a thickness of 3mm in the

above-mentioned trial. Therefore, JIS of the resin constituent for spacers As for the upper limit of A degree of hardness, 90 is desirable. Moreover, JIS In the above-mentioned trial, a glass crack is generated with neither of the multiple glass which, as for multiple glass using the resin constituent whose A degree of hardness is 75 as a spacer, used the glass plate with 5mm [in thickness], and a thickness of 3mm. Since thickness is 3mm, the glass plate for multiple glass generally used now is JIS of the resin constituent for spacers. The range of 40-75 is more suitable for A degree of hardness.

[0043] moreover, the steam transmission coefficient as the whole resin constituent -- 5000 -- in order to maintain the dew-point engine performance further below $\times 10^{-13}$ cm³, cm/cm², and sec-Pa -- a steam transmission coefficient -- 500 -- it is desirable to carry out to below $\times 10^{-13}$ cm³, cm/cm², and sec-Pa.

[0044] in this case, butyl system rubber -- that steam transmission coefficient -- 3000 -- it is desirable that they are below $\times 10^{-13}$ cm³, cm/cm², and sec-Pa. moreover, the steam transmission coefficient of crystalline polyolefine -- 3000 -- below $\times 10^{-13}$ cm³, cm/cm², and sec-Pa -- desirable -- 500 -- below $\times 10^{-13}$ cm³, cm/cm², and sec-Pa are still more desirable.

[0045] Like heat reflective glass and low reflection factor glass, the glass plates used for the configuration of the multiple glass of this invention are glass plates, such as an aperture currently used widely and a door, tempered glass, a glass laminate, metal wired glass, heat absorbing glass, the glass plate that coated the inside with a metal or other inorganic substances thinly, the acrylic resin plate called organic glass, a polycarbonate plate, etc., and are not usually further limited especially to building materials, a car, etc. Moreover, multiple glass may consist of glass plates of two sheets, and may consist of glass plates of three or more sheets.

[0046] The multiple glass of this invention applies the adhesives which dissolved in the solvent to the glass side where a spacer contacts if needed, and is air-dried. As shown in drawing 2, it is predetermined spacing (for example, 6mm) about the glass plates 1a and 1b of two sheets. With extrusion using the general-purpose extruder which has the cylinder of a suitable diameter as held to 12mm, next shown in drawing 3 from the die which is made to carry out melting of the resin constituent of said this invention at the temperature of 150-200 degrees C, and has a suitable tip configuration It is formed by making it intervene between the glass plates of two sheets, and cooling.

[0047] The approach of this double stratification is an example, and the manufacture approach of the multiple glass of this invention itself is not limited to the above-mentioned approach, for example, it fabricates the spacer of a request configuration beforehand from said resin constituent, with the glass plate of two sheets, it may carry out thermocompression bonding of this, and may form it.

[0048]

[Example] Next, although an example and the example of a comparison are given and this invention is explained still more concretely, this invention is not limited to these examples.

[0049] Butyl system rubber and crystalline polyolefine are included first. example [of the resin constituent for << spacers >> -- The resin constituent for spacers whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber to both total quantity is 2 - 50 % of the weight, The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine including butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler 50 - 98 % of the weight, The rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and the example about the resin constituent for spacers whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine are below the 200 weight sections is shown. The examples 1-5 of the following presentation are examples, and the examples 6-10 of a presentation are examples of a comparison.

[0050] Add the drying agent which consists of 4A mold desiccation zeolite powder in the constituent shown in the [example 1 of presentation] table 1 after kneading the component except a drying agent, knead further, homogeneity is made to distribute a drying agent, and it is JIS. A degree of hardness obtained the resin constituent for spacers of 65.

[0051] In the same procedure as the example 1 of the [examples 2-10 of presentation] presentation, the resin constituent for spacers whose JISA degree of hardness after zeolite

mixing is the value shown in Table 2 was obtained by the combination shown in Table 1.

[0052] In addition, it sets to these tables and isobutylene isoprene rubber is Mooney viscosity 47. The isobutylene isoprene rubber and partial bridge formation isobutylene isoprene rubber which are ML(1+8) 100degree C are Mooney viscosity 45. The partial bridge formation isobutylene isoprene rubber which is ML(1+3) 121degree C, and HDPE are high density polyethylene which is a melt index 20, 130 degrees C of crystalline melting points, and about 80% of crystallinity. Moreover, JIS A degree of hardness is JIS. It measured according to K6301. The numeric value of a presentation of an ingredient expresses weight %.

[0053] The example which produced multiple glass using example [of << multiple glass] >>, next the resin constituent for spacers of the above-mentioned examples 1-10 of a presentation is shown. The following examples 1-5 are examples, and Examples 6-10 are examples of a comparison.

[0054] [Example 1] Spacing of 6mm or 12mm was maintained using the extruder for rubber which has a cylinder with a diameter of 40mm for the resin constituent for spacers of the example 1 of a presentation between 3mm in the size of 320x500mm which carried out priming of the spacer contact section beforehand, and thickness, and two 5mm float glass plates, extrusion molding of the spacer was carried out to the periphery section of a glass plate, and the multiple glass of this invention was obtained.

[0055] In the same procedure as the example 1 of [Examples 2-10], others obtained multiple glass like Example 1 using the resin constituent for spacers of the examples 2-10 of a presentation.

[0056] [The evaluation approach]

Plate [-proof] gap trial: The glass plate of one side of each obtained multiple glass was fixed, the 13kg load was applied to the glass plate of another side, and the downward movement magnitude of the glass plate by the side of a load-ed was measured on 25-degree C temperature conditions. The movement magnitude considered as success what is 0.5mm or less in 20 minutes.

Acceleration durability test: JIS According to R3209, the multiple glass which has a spacer with a thickness of 6mm was followed.

Dew-point measurement: JIS According to the equipment and the approach of a publication, it measured to R3209.

These measurement results are shown in Table 2.

[0057]

[Table 1]

	ブチル系ゴム				HDPE	無機フィラー		添加物	
	ブチル ゴム	部分架橋 ブチルゴム	PIB -A	PIB -B		タルク	カーボン ブラック	粘着 付与剤	ゼオ ライト
組成例 1			25.6	17.0	4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 2	29.8		4.3		12.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 3	15.6		15.6		15.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 4		21.3	4.2		21.3	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 5	45.9				0.9	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 6		46.8				10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 7		11.5			46.0	10.6	10.6		21.3
組成例 8		5.6			51.9	10.6	10.6		21.3
組成例 9		21.3	25.6			10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 10		8.5	4.2		34.0	10.6	10.6	10.6	21.3

[0058]

[Table 2]

	スペーサ 硬度	複層ガラス評価項目							
		A	B	C	D	E	F	G	H
例 1	65	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 2	75	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 3	90	a	a	a	a	合格	0	5	なし
例 4	90	a	-55	-54	-40	合格	0	4	なし
例 5	20	a	a	a	a	合格	0	0	c
例 6	10	a	a	a	a	合格	0	0	c
例 7	95	a	a	a	中止	b	0	4	なし
例 8	95	a	a	a	中止	b	11	19	なし
例 9	0	a	a	a	a	合格	0	0	あり
例 10	95	-60	10	中止	中止	b	9	14	なし

[0059] Front Naka, evaluation-criteria A-H, and evaluation result a-c show the semantics of a degree.

[0060]

A: An initial dew-point (what has a dew-point high [6 *****]), B:JIS After [R3209 acceleration durability test 1 termination] dew-point (degree C), C:JIS An after [R3209 acceleration durability test 2 termination] dew-point (degree C), D:JIS After [R3209 acceleration durability test 3 termination] dew-point (degree C), E:JIS3 judging, F : The glass crack of the multiple glass of the thickness under durability test (5mm / 6mm / 5mm: a glass plate / hollow layer / glass plate) (100 inside of the body), G: The glass crack (100 inside of the body) of the multiple glass of the thickness under durability test (3mm / 6mm / 3mm: a glass plate / hollow layer / glass plate), H:plate gap, -60 degrees C or less of a:dew-points, b : Since the spacer is hard, As for a glass crack, the thickness of 12mm of generating and c:hollow layer is those with a plate gap, and 6mm has no plate gap.

[0061] From the result of Table 2, butyl system rubber and crystalline polyolefine are included for a spacer. The resin constituent whose rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine the rate of butyl system rubber to both total quantity is 2 - 50 % of the weight, Or butyl system rubber, crystalline polyolefine, and an inorganic filler are included. The rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine 50 - 98 % of the weight, By fabricating from the resin constituent whose rates of the inorganic filler to a total of 100 weight sections of butyl system rubber and crystalline polyolefine the rate of crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight, and are below the 200 weight sections A plate gap etc. can be prevented while being able to reduce the glass crack of multiple glass. In this case, in a spacer, only with the above-mentioned resin constituent, there is no rise of a dew-point and the multiple glass with which the configuration of multiple glass was held is obtained.

[0062] In addition, the rate of butyl system rubber of as opposed to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine in the resin constituent for spacers used for the multiple glass of Example 5 is [the rate of crystalline polyolefine] 1.92 % of the weight 98.08% of the weight. On the other hand, in the multiple glass of Example 5, some plate gap may arise depending on the thickness of a hollow layer. Although the rate of butyl system rubber to the total quantity of butyl system rubber and crystalline polyolefine also contains substantially the blending ratio of coal of the above-mentioned example 5 of a presentation from this, as for saying [that the rate of 50 - 98 % of the weight and crystalline polyolefine is 2 - 50 % of the weight], it turns out that the blending ratio of coal like the examples 1-4 of a presentation is desirable.

[0063]

[Effect of the Invention] According to this invention, the activities filled up with two-stage-

sealing material are reduced, care-of-health time amount is unnecessary, the routing counter at the time of multiple glass manufacture can be reduced sharply, and multiple glass is offered by high productivity and high low cost.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The partial outline sectional view showing an example of the configuration of the multiple glass of this invention

[Drawing 2] The partial outline sectional view showing the configuration of multiple glass before double-stratifying using the spacer which consists of a thermoplastics constituent

[Drawing 3] The schematic diagram of the extruder used for melting of a thermoplastics constituent in this invention

[Drawing 4] The sectional view showing an example of the configuration of conventional multiple glass

[Drawing 5] The sectional view showing an example of the configuration of conventional multiple glass

[Description of Notations]

10: Multiple glass

1a, 1b: Glass plate

20: Spacer

30: Hollow layer

[Translation done.]

特開平 10-114552

(43) 公開日 平成 10 年 (1998) 5 月 6 日

(51) Int. Cl.⁴
C 03 C 27/06
E 06 B 3/06

F I
C 03 C 27/06
E 06 B 3/06

特許請求 未請求 請求項の枚数 6

OL

(全 8 頁)

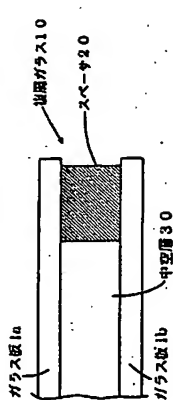
(31) 優先権主張番号	特開平 8-346292	(11) 出願人	000000044 旭硝子株式会社
(32) 出願日	平成 8 年 (1996) 12 月 15 日	(12) 発明者	越谷 義 東京 都千代田区丸の内 1 丁目 1 番 2 号
(31) 優先権主張番号	特開平 7-339629	(12) 発明者	中川 秀樹 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町 1150 番地
(32) 優先日	平 7 (1995) 12 月 26 日	(12) 発明者	小寺 省吾 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町 1150 番地
(33) 優先権主張国	日本 (JP)	(14) 代理人	井理士 泉名 健治 旭硝子株式会社 中央研究所内
(31) 優先権主張番号	特開平 8-314865		
(32) 優先日	平 8 (1996) 8 月 14 日		
(33) 優先権主張国	日本 (JP)		

(54) (発明の名称) 樹脂スベーサを用いた複層ガラス

(57) (要約)

【課題】複層ガラスのこれまでにない高い生産性を実現し、複層ガラスをより安価にかつ簡単に提供すること。

【解決手段】スベーサ 20 が、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量が 50～98 重量%である熱可塑性樹脂組成物からなる複層ガラス 10。



(特許請求の範囲)

【請求項 1】2 枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスベーサを介して隔壁されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スベーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量が 50～98 重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が 2～50 重量%である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする複層ガラス。

【請求項 2】2 枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスベーサを介して隔壁されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スベーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの割合が 50～98 重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が 2～50 重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計 100 重量%に対する無機フィラーの割合が 200 重量%以下である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする複層スベーサを用いた複層ガラス。

【請求項 3】結晶性ポリオレフィンがポリエチレン、ポリプロピレンまたはそれらの変性体から選ばれる 1 種以上の重合体からなる、請求項 1 または 2 の複層ガラス。

【請求項 4】結晶性ポリオレフィンの水蒸気透過係数が、 $3000 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、 Pa 以下である請求項 1、2 または 3 の複層ガラス。

【請求項 5】ブチル系ゴムの水蒸気透過係数が、 $3000 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、 Pa 以下である請求項 1、2、3、4 または 5 の複層ガラス。

30

【請求項 6】前記熱可塑性樹脂組成物の水蒸気透過係数が、 $5000 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、 Pa 以下である請求項 1、2、3、4 または 5 の複層ガラス。

(発明の詳細な説明)

(0001)

【発明の属する技術分野】本発明は、樹脂スベーサを用いた複層ガラスに関する。

(0002)

【従来の技術】近年、複層ガラスは省エネルギーの観点から注目され、その需要が増加しつつある商品である。通常の複層ガラスには多くの工程が必要であるため、通常の複層ガラスに比べてコストが高くなり、さらなる低コスト化が望まれている。

40

【0003】現在の複層ガラスの多くは、図 4 に示すように、最低 2 枚のガラス板 1a、1b をスベーサ 20 を介して対向させ、ガラス板 1a、1b との間に中空層を形成してなる。そして、ガラス板 1a、1b とスベーサ 20 の間に一次シール材 3 を介在させることによって、中空層を外気から遮断し、対向しているそれらのガラス板の周縁部の内面とスベーサの両面とで構成された空間

50

2

(凹部) をポリスチレン系またはシリコン系で被覆される常温硬化型の二次シール材で封着して行なう。

(0004) これまで、複層ガラスの製造工程において、種々の面硬化あるいは自動化による生産性改良、ひいてはコストダウンなどが検討され、提案されてきた。例えば、アルミニウムスベーサを折り曲げ方式にした複層ガラスの製造方法が知られている。また、図 5 に示すようにアルミニウムスベーサの代わりに熱融剤を盛り込んだ凹部をスベーサ 4 として用いる方法も提案されてきている。

(0005) しかし、こうした常温硬化型二次シール材を用いた複層ガラスでは、用いられるスベーサの強度を向上させる必要があり、シール材の硬化のために長時間の発生を必要とする。そのため発生終了までは製品を出荷できない。

(0006) したがって、工場内に発生スベーサを置く、あるいは一定期間製品を保管した後に出荷しなければならぬ。結局は長期化し、客先の要望に必ずしも応えられない。また、将来的に増加する需要に対応するには、これまで以上の発生スベーサが必要となるため、これを回避し、充分な複層ガラスの供給を確保するために、は、上記の発生時間の短縮が必要と考えられている。

(0007)

【発明が解決しようとする課題】複層ガラスの低コスト化の点からは、乾融剤を盛り込んだ凹部からなる成形物をスベーサとして用い、二次シール材を用いずに複層ガラスを製造する方法が提案されている (特開 61-20501)。しかし、このスベーサ用凹部はスベーサとして強度が不足し、凹部には上記凹部からなるスベーサ単独では複層ガラスとしての形状の維持が困難であった。

(0008) また、押出成形可能な硬質樹脂、例えば、塩化ビニル樹脂やホットメルトブチルなどの熱可塑性樹脂に乾融剤を盛り込んだ JIS A 硬度 95 の硬さを有する材料をスベーサとして用いる複層ガラスが知られている (特開 7-17748)。しかし、この JIS A 硬度 95 の硬さを有する材料を、複層ガラスのスベーサまたはシール材として用いた場合には、複層ガラスのシール部またはガラス板にかかる応力が大きくなり、シールの割れや複層ガラス自体のガラス割れが生じるなどの欠点がある。したがって現状では、二次シール材を用いずに、複層ガラスとして要求されるスベーサのみで、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。

(0009) ところで、特開 7-17748 にもホットメルトブチルの例示があるように、ブチル系ゴムはその粘着性、高弾性および低透過性という面から複層ガラスのシール材として用いられている。しかし、硬度が低くコーロドフロロ性があるため、使用用途によって

は長期耐久性の点で単独では問題がある。また溶融粘度が高いために、作業性が悪いという問題もある。硬度を向上させるために各種フィラーを混合する方法もあるが、フィラーの添加のみによって高硬化を行うと、溶融粘度が上昇し作業性を著しく損なうことに加え、混合によつては、引張強さや引き裂き強度が低下するため望ましくない。

[0010] すなわち、ブチル系ゴムはガラス転とスベーサとの間の面をシールし、気密性を維持する機能を有することから、複層ガラスの密封シール材として好適に用いることができる。この場合、ブチル系ゴムの硬度が低いことより通常はアルミニウム膜などの金属製のスベーサが用いられ、スベーサとガラス板との間にブチル系ゴムがシール材として配設されることになる。しかし、前述のように金属製スベーサを用いる必要上複層ガラスの製造工程が増殖化する。

[0011] こうして、金属製スベーサを必要とせず、製造工程をより簡便化しうるシール材の開発が望まれている。現状では、二次シールを用いず、複層ガラスとして要求されるスベーサのみで附合、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。

[0012] 本発明の目的は、製造後の長時間を要する養生の問題を解消し、これまでにない高い生産性を実現できる複層ガラスを提供することにある。

[0013] [課題を解決するための手段] 本発明は、2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスベーサを介して隔壁されて対向配設された複層ガラスにおいて、

即ちスベーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含有し、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする複層ガラスを提供する。

[0014] また、本発明は、2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスベーサを介して隔壁されて対向配設された複層ガラスにおいて、前述スベーサは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量%に対する無機フィラーの割合が200重量%以下である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする樹脂スベーサを用いた複層ガラスを提供する。

[0015] [発明の効果] 以下、図面を参照して本発明をさらに詳細に説明する。図1は、本発明の複層ガラスの構成の一例を示す部分断面図であり、複層ガラス10は、2枚のガラス板10aおよび10bが、間に中空層30

が形成されるように、以下の配合割合の熱可塑性樹脂組成物からなるスベーサ20のみによって所定の両面に保持される。なお、上記の「スベーサ20のみ」によるの意味は、他に二次シール材や金属製のスベーサなどを必要とすることを指すものであり、必要に応じて適宜な変更を含むものとする。

[0016] 本発明におけるスベーサ用樹脂組成物は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である樹脂組成物である。

[0017] また、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量%に対する無機フィラーの割合が200重量%以下である樹脂組成物である。

[0018] 本発明におけるブチル系ゴムとは、イソブチレンの単重合体や他の単重合体との共重合体、およびそれらの変性体を含む。共重合体としては比較的少量のイソブレンと共重合して得られる共重合体（通常ブチルゴムと呼ばれるもの）が好ましい。変性体としてはハロゲン化ブチルゴムや部分架橋ブチルゴムなどがある。特に好ましいブチル系ゴムは、通常ブチルゴムと呼ばれるイソブチレンとイソpreneとの共重合体、および部分架橋ブチルゴムである。

[0019] 本発明における結晶性ポリオレフィンは、エチレンやプロピレンなどのオレフィンの単重合体や他の単重合体との共重合体、およびそれらの変性体であつて、結晶性を有しているものをいう。重合体の構造はシジジオクタクチック構造やアイソタクチック構造であることが好ましいが、他の構造を含んでいてもよい。オレフィンとしては特にエチレンとプロピレンが好ましい。

[0020] 共重合体としては2種以上のオレフィンの共重合体やオレフィンと他の単重合体との共重合体があり、エチレンやプロピレンと結晶性を阻害しない他の単重合体との共重合体が適当である。また共重合体として、交互共重合体やランダム共重合体よりもブロック共重合体が適当である。変性体としては酸無水物、カルボキシ基、エポキシ基などの官能基を導入した結晶性ポリオレフィンがある。

[0021] 本発明において特に好ましい結晶性ポリオレフィンは、実質的な単重合体であるポリエチレンとポリプロピレンである。例えば、ポリエチレンとして低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレンなどを使用できる。

[0022] 結晶性ポリオレフィンの結晶化度は30%以上が好ましく、特に50%以上が好ましい。例えば、通常の結晶性ポリオレフィンは、30%程度の結晶化度

の値は、低密度ポリエチレンで50～60%、高密度ポリエチレンで75～90%、ポリプロピレンで55～65%である。分子量は特に限定されないが、数平均分子重でポリエチレンでは約20万～80万、ポリプロピレンでは約10万～40万のものが適当である。

[0023] このようにポリエチレンやポリプロピレンは高い結晶性を有するためブチル系ゴムより低透過性であり、なかでもより低い透過性を示すものは、ブチル系ゴム単独の場合に比較して、組成物の透過率が低下し成形加工性が向上する。したがって、種々の無機フィラーを配合することが可能となつてより高硬度のシール材を実現させ、また経済性の観点からも特にこれら材料が好ましい。

[0024] 上記の樹脂組成物においてブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～50重量%であり、好ましくは5～40重量%である。結晶性ポリオレフィンの割合が2重量%未満では、ブチル系ゴムの高硬化が難しく、また50重量%を超えると結晶性ポリオレフィンの性質が主体となりブチル系ゴムの特性が現れにくくなる。

[0025] 無機フィラーが配合される場合、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は少なくてもよい。例えば、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量%に対して約50重量%以上の無機フィラーが配合される場合には、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～20重量%で充分目的の効果が得られる。

[0026] ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含む本発明における樹脂組成物に実質的に有効量の無機フィラーを配合できる。実質的に有効量とは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量%に対して1重量%以上をいう。あまりに多量の無機フィラーを配合することは組成物の溶融粘度が上昇し、また、引き裂き強度や引き裂き速度が低下するため、配合量の上限は200重量%であり、好ましくは150重量%以下である。無機フィラー配合量の増加の程度は好ましい下限は10重量%である。

[0027] 無機フィラーとしては、炭酸カルシウム、タルク、マイカ、カーボンブラックなど、通常無機フィラーとして用いられているものを、単独または2種以上併用して使用できる。

[0028] 本発明におけるスベーサ用樹脂組成物が少なくとも最終的な用途に使用される前に、それらに含まれるブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとが高温で重合されていることがきわめて有効である。この重合における高温とは結晶性ポリオレフィンの結晶化度以上をいう。この重合温度はブチル系ゴムの分解点以下である必要があり、通常のブチル系ゴムの分解点である約300℃以下が好ましい。特に生産性などの面か

ら200℃以下が好ましい。したがってまた結晶性ポリオレフィンの結晶化度は200℃以下が好ましい。

[0029] スベーサ用樹脂材料はその使用温度範囲においてではできるだけ硬度変化の少ないことが好ましい。こうした要件を満足するためには結晶性ポリオレフィンとしては、通常の使用上限温度以上に結晶化点を有するものが好ましい。スベーサ用樹脂材料の通常の使用上限温度は約80℃である。

[0030] 本発明においては結晶性ポリオレフィンが結晶相による溶融力で拘束されているために、ガラス転移温度を超えた温度領域でも非晶性樹脂に見られる急激な硬低下や流動状態は結晶化点以下では起こらない。逆に、結晶化点を境に溶融粘度の著しい低下が見られ、ブチル系ゴムとの混練性を良好ならしめる効果が期待できる。

[0031] このような樹脂組成物には一般的にスベーサ用途に必要な樹脂材料に配合されうる乾性油および添加物を配合できる。ここでいう添加物としては、例えば、増粘剤、顔料、帯電防止剤、粘着付与剤、可塑剤、老防防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、シランカップリング剤などの加水分解性シリル基含有化合物、発泡剤、防霉剤、フィラー以外の充填材、などがある。特にこの樹脂組成物をスベーサに用いる場合、ゼオライト、シリカゲル、アルミナなどの乾燥剤、粘着付与剤、可塑剤、シランカップリング剤、各種安定剤の配合が好ましい。

[0032] 特にゼオライトなどの乾燥剤を樹脂組成物中に5～30重量%配合することが好ましい。また、粘着付与効果と可塑化効果を与えるために、ポリソブチレンを、ポリソブチレン以外のブチル系ゴム100重量%に対し、200重量%以下、特に5～150重量%添加することも好ましい。

[0033] 以上を総合すると、特に好ましいスベーサ用樹脂組成物の成分配合割合は、ブチル系ゴム30～55重量%、結晶性ポリオレフィン1～8重量%、無機フィラー15～30重量%、乾性油および添加物20～40重量%である（もちろん、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である）。

[0034] 上記の樹脂組成物は、少なくともブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを結晶性ポリオレフィンの結晶化点以上ブチル系ゴムの分解点以下の温度で重合して製造されることが好ましい。この重合温度は100～280℃、特に120～250℃、が好ましい。他の配合物や添加物は同時に重合してもよく、その重合温度は後に重合してもよい。

[0035] 本発明における樹脂組成物は実質的に熱可塑性の組成物であり、通常の溶融法で押出し機やニーダーなどの混合機で混合できる。さらに、混合機で連続して成形を行うこともできる。また、樹脂組成物を押し

ット状などの成形材料とし、その後成形を行うこともできる。成形法としては押出し成形法や射出成形法などの溶融成形法を使用できる。

01/04/2014 14:00:00

(0036) また成形品と連結して成形物を、2枚以上の上のガラス板が対向配置された複層ガラス材の端部に配置して複層ガラスを製造できる。この場合成形板から出た高温の組成物を用いることにより、ガラス板との密着性が増え、成形物の強度が得られる。また、アブリーカーなどの装置を用いて組成物の温度低下を抑制しながら、複層ガラス材に適用することもできる。この装置としては加熱可能なものも好ましい。

(10037) 以上のように、本発明におけるスベーパー樹脂組成物は、上記成分を混練して調製される。その調製に際しては、得られる樹脂組成物の25℃における1SA硬度が90以下になるように必要成分を配合することが好ましい。90以下とする理由は次のとおりである。

【0038】JIS A 炭素が90を超え熱可塑性材料を複層ガラスのスペーサとして用いようとした場合、クリールがほとんど居ないために、JIS R 3200の9に示された耐久試験を実施した際、高温下で空気の膨張によって両方がガラス板とスペーサとの接合界面にかからなくなる。このため、接着力が不十分であれば剥離が発生し、両面に接着力が確保されている場合でもガラスが割れることがある。現在知られている接合剤でも、高温あるいは高圧をかけることによって、中空層が膨張する反力に耐えられないだけの接着力を得ることは可能であるが、高温高圧をかけることによってガラスの破損が発生し、著しく生産性を低下させることになるため、製造コスト低減を目標とする本発明の目的には妨げない。

(0039) 一方、硬度が低すぎると灌漑ガラスの形状保持性に問題が生じるので、樹脂組成物の25℃におけるJIS A硬度は10以上になるように各成分を配合することが必要。さらにJIS A硬度が10以上であることが好ましい。さらに硬度が比較的小さい場合、中空層の厚みが、厚いところと薄いところとで硬度を引寄せることがある。

【0040】一般的に用いられる複屈ガラスは、その中空層の厚みが4～18mm程度である（6mmまたは1

2mmのものが多い)。したがって、硬度が比較的小さい場合には中空層の厚みが6mmのものでは板すれが生じてしまじなくとも、1.2mmのものでは板すれが生じてしまうことがある。上記硬度を4.0以上にするこによって、中空層の厚みが1.2mmのものでも板すれを生じないようである。このことから、本発明における硬度調整はガラスにおいて熱可塑性樹脂スベークのJIS硬度4.0以上が特に好ましい。

(0041) JIS A 硬度が90を超える樹脂組成物をスぺーサとして用いた樹脂ガラスは、ガラス板に与える圧力が大きい。そのため、JIS R3209で規定されている厚さ5mmおよび厚さ3mmのガラス板を

いたいずれの複層ガラスでも、加圧耐久試験中にガラス割れが生じる。

【0042】これに対して JIS A 硬度が 90 の樹脂組成物をスベサとして用いた複層ガラスは、厚さ 5 mm のガラス板を用いた複層ガラスでは上記試験でガラス割れは発生しない。一方、厚さ 3 mm のガラス板を用いた複層ガラスでは上記試験でガラス割れが発生する可能性がある。また、JIS A 硬度の上限は 90 が好ましい。また、JIS A 硬度が 75 である樹脂組成物をスベサとして用いた複層ガラスは、厚さ 5 mm および厚さ 3 mm のガラス板を用いたいずれの複層ガラスでも、上記試験ではガラス割れは発生しない。現在一般的に使用されている複層ガラス用樹脂組成板は厚さが 3 mm のものであるため、スベサ用樹脂組成板は厚さが 4.0 ～ 7.5 の範囲がより好適である。

【0043】また、樹脂組成物全体としての水蒸気透過係数が $5000 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ 、 $c \cdot P$ 以下、さらに露点性能を維持するために水蒸気透過係数が $500 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ 、 $c \cdot P$ 以下にすることが好ましい。

【0044】この場合、ブチル系ゴムは、その水蒸気透過係数が $3.000 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$ 、 $\text{ec} \cdot \text{Pa}$ 以下であることが好ましい。また、結晶性ポリオレフィンの水蒸気透過係数は $3.000 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{ec} \cdot \text{Pa}$ 以下が好ましく、 $5.00 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{ec} \cdot \text{Pa}$ 以下が好ましい。

【0045】本発明の複層ガラスの構成に使用するガラス板は、通常、基材、片面などに広く使用されている窓、ドアなどのガラス板、強化ガラス、合わせガラス、金属網入りガラス、熱反射取ガラス、さらには、熱反射取ガラス、低反射率ガラスなどのように、内面に金属や他の無機物をアークコーティングしたガラス板、有機板などと呼ばれるアクリル樹脂版、ポリカーボネート板などであり、特に限定されない。また、複層ガラスは2枚のガラス板から構成されるものでもよく、3枚以上のガラス板から構成されるものでもよい。

【0046】本発明の樹脂ガラスは、必要に応じてスペーサが当接するガラス面に溶剤に溶解した接着剤を塗布し乾燥しておき、図2に示すように2枚のガラス板1a、1bを所定間隔（例えば6mm、12mm）に固定し、次に、図3に示すように適当な厚さのシリンドリカルな有する汎用の押出機を用い、前記本発明の樹脂組成物を、例えば150〜200℃の温度で押出せし、適当な先端形状をもつダイから押出しながら、2枚のガラス板1a、1bに介在させて樹脂することによって形成される。

【0047】この複屈折の方法は一例であって、本発明の複屈折ガラスの製造方法自体は上記方法に限定されず、例えば、前記樹脂組成物が、所望形状のスベーパーに加工されて用いられる。

成形しておき、これを例えば2枚のガラス板で熱圧着させて形成してもよい。

【0048】
【実施例】次に実施例および比較例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。

【0049】《スベーパーサ用組成物の例》まず、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含む、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であるスベーパーサ用組成物、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含む、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が20～200重量部以下であるスベーパーサ用組成物に関する実施例を示す。下記組成例1～5は実施例であり、組成例6～10は比較例である。

【0050】【組成例1】表1に示す組成物において、乾性油を除く成分を混練した後に、4 A型乾性ゼオライトパウダーからなる乾性剤を加え、さらに混練して乾性剤と油とを均一に分散させてJIS A硬度が65のスペーサー用組立組成物を得た。

【0051】【組成例2～10】組成例1と同様の手順で、表1に示す配合でゼオライト混合後におけるJIS A硬度が表2に示す値であるスペーサー用組立組成物を得た。

【0052】なお、これらの表において、ブチルゴムはムニ一粘度47 ML (1+8) 100℃であるブチルゴム、部分架橋ブチルゴムはムニ一粘度45 ML (1+3) 120℃である部分架橋ブチルゴム、HDP

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65
66
67
68
69
70
71
72
73
74
75
76
77
78
79
80
81
82
83
84
85
86
87
88
89
90
91
92
93
94
95
96
97
98
99
100
101
102
103
104
105
106
107
108
109
110
111
112
113
114
115
116
117
118
119
120
121
122
123
124
125
126
127
128
129
130
131
132
133
134
135
136
137
138
139
140
141
142
143
144
145
146
147
148
149
150
151
152
153
154
155
156
157
158
159
160
161
162
163
164
165
166
167
168
169
170
171
172
173
174
175
176
177
178
179
180
181
182
183
184
185
186
187
188
189
190
191
192
193
194
195
196
197
198
199
200
201
202
203
204
205
206
207
208
209
210
211
212
213
214
215
216
217
218
219
220
221
222
223
224
225
226
227
228
229
230
231
232
233
234
235
236
237
238
239
240
241
242
243
244
245
246
247
248
249
250
251
252
253
254
255
256
257
258
259
260
261
262
263
264
265
266
267
268
269
270
271
272
273
274
275
276
277
278
279
280
281
282
283
284
285
286
287
288
289
290
291
292
293
294
295
296
297
298
299
300
301
302
303
304
305
306
307
308
309
310
311
312
313
314
315
316
317
318
319
320
321
322
323
324
325
326
327
328
329
330
331
332
333
334
335
336
337
338
339
340
341
342
343
344
345
346
347
348
349
350
351
352
353
354
355
356
357
358
359
360
361
362
363
364
365
366
367
368
369
370
371
372
373
374
375
376
377
378
379
380
381
382
383
384
385
386
387
388
389
390
391
392
393
394
395
396
397
398
399
400
401
402
403
404
405
406
407
408
409
410
411
412
413
414
415
416
417
418
419
420
421
422
423
424
425
426
427
428
429
430
431
432
433
434
435
436
437
438
439
440
441
442
443
444
445
446
447
448
449
450
451
452
453
454
455
456
457
458
459
460
461
462
463
464
465
466
467
468
469
470
471
472
473
474
475
476
477
478
479
480
481
482
483
484
485
486
487
488
489
490
491
492
493
494
495
496
497
498
499
500
501
502
503
504
505
506
507
508
509
510
511
512
513
514
515
516
517
518
519
520
521
522
523
524
525
526
527
528
529
530
531
532
533
534
535
536
537
538
539
540
541
542
543
544
545
546
547
548
549
550
551
552
553
554
555
556
557
558
559
560
561
562
563
564
565
566
567
568
569
570
571
572
573
574
575
576
577
578
579
580
581
582
583
584
585
586
587
588
589
590
591
592
593
594
595
596
597
598
599
600
601
602
603
604
605
606
607
608
609
610
611
612
613
614
615
616
617
618
619
620
621
622
623
624
625
626
627
628
629
630
631
632
633
634
635
636
637
638
639
640
641
642
643
644
645
646
647
648
649
650
651
652
653
654
655
656
657
658
659
660
661
662
663
664
665
666
667
668
669
670
671
672
673
674
675
676
677
678
679
680
681
682
683
684
685
686
687
688
689
690
691
692
693
694
695
696
697
698
699
700
701
702
703
704
705
706
707
708
709
710
711
712
713
714
715
716
717
718
719
720
721
722
723
724
725
726
727
728
729
730
731
732
733
734
735
736
737
738
739
740
741
742
743
744
745
746
747
748
749
750
751
752
753
754
755
756
757
758
759
760
761
762
763
764
765
766
767
768
769
770
771
772
773
774
775
776
777
778
779
780
781
782
783
784
785
786
787
788
789
790
791
792
793
794
795
796
797
798
799
800
801
802
803
804
805
806
807
808
809
810
811
812
813
814
815
816
817
818
819
820
821
822
823
824
825
826
827
828
829
830
831
832
833
834
835
836
837
838
839
840
84

	ブチル系ゴム			HDP	異性化率	増加物
	7% 部分架橋	PIB				
		5% 7' 52.1	-A -B			
組成例 1		25.5	17.0	4.2	10.6	10.6
組成例 2	29.8	4.3		12.8	10.6	10.6
組成例 3	15.6	15.5		15.8	10.6	10.6
組成例 4		21.3	4.2	21.3	10.6	10.6
組成例 5	45.9			0.8	10.6	10.6
組成例 6		48.8			10.6	10.6
組成例 7		11.5		46.0	10.6	10.6
組成例 8		5.6		51.9	10.6	10.6
組成例 9		21.3	25.6		10.6	10.6
組成例 10		8.5	4.2	34.0	10.6	10.6

[装2]

[0058]

11

12

スベーサ	複層ガラス評価項目									
	A	B	C	D	E	F	G	H		
例1	85	a	a	a	合格	0	0	なし		
例2	75	a	a	a	合格	0	0	なし		
例3	90	a	a	a	合格	0	5	なし		
例4	90	a	a	a	-40	合格	0	4	なし	
例5	20	a	a	a	合格	0	0	c		
例6	10	a	a	a	合格	0	0	c		
例7	95	a	a	a	中止	b	0	4	なし	
例8	95	a	a	a	中止	b	11	19	なし	
例9	0	a	a	a	合格	0	0	あり		
例10	95	-40	10	中止	b	9	14	なし		

【0059】表中、評価項目A～Hおよび評価結果a～cは次の意味を示す。

【0060】

A：初期破点（6体中最も破点が高いもの）。

B：JIS R3209加速耐久試験1回終了後破点

(℃)。

C：JIS R3209加速耐久試験2回終了後破点

(℃)。

D：JIS R3209加速耐久試験3回終了後破点

(℃)。

E：JIS3種判定。

F：耐久試験中における厚み（5mm/6mm/5mm

m：ガラス板/中空層/ガラス板）の複層ガラスのガラス

ズ割れ（100体中）。

G：耐久試験中における厚み（3mm/6mm/3mm

m：ガラス板/中空層/ガラス板）の複層ガラスのガラス

ズ割れ（100体中）。

H：破すれ。

a：破点-60℃以下。

b：スベーサが破いたため、ガラス割れが発生。

c：中空層の厚み12mmは破すれあり、6mmは破す

れなし。

【0061】表2の結果より、スベーサをブチル系ゴム

と結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計値に対す

るブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリ

オレフィンの割合が2～50重量%である複層組成物、

またはブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィ

ラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと

の合計値に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量

%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であ

り、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計10

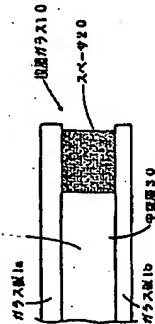
0重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以

下である樹脂組成物から成ることに、複層ガ

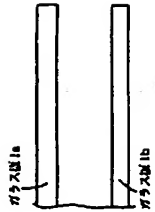
ラスのガラス割れを低減できるとともに、破すれ等を防

50 30：中空層

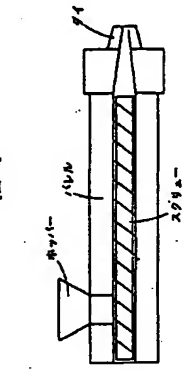
【図1】



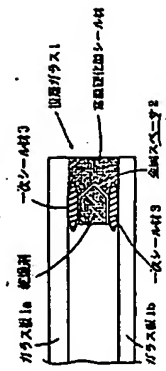
【図2】



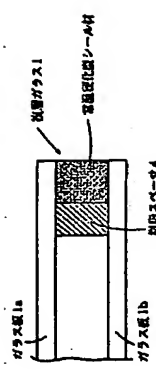
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(72)発明者 松山 祥孝

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.